

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-036309

(43)Date of publication of application : 02.02.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 10-219659

(71)Applicant : C UYEMURA & CO LTD

(22)Date of filing : 17.07.1998

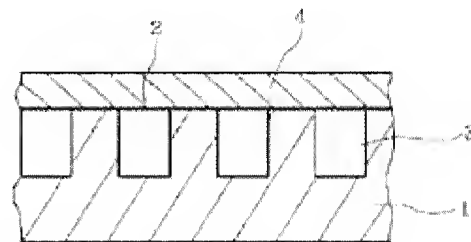
(72)Inventor : IKEDA KONOSUKE  
MURAKAMI TORU

### (54) METAL SEPARATOR FOR FUEL CELL

#### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a metal separator for a fuel cell, which has a low contact resistance, excellent water repellency, and good anti-corrosiveness.

SOLUTION: A fuel cell module is equipped with positive and a negative electrodes and electrolyte interposed between them, wherein a metal separator 1 is installed on each side of the module and is furnished with a groove 3 for gas flowing, and the surface of this groove at least is lined with a noble metal composite plating film consisting of entectoid of fluoro-resin or graphite fluoride particles. These separators 1 for fuel cell may be used in the same manner as a conventional separator, in particular favorably used in a fuel cell with a solid highpolymer electrolyte, and have low contact resistance, excellent water repellency at the groove 3, and good gas flowing possibility, and further an excellent anti-corrosiveness owing to the noble metal as matrix.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-36309

(P2000-36309A)

(43) 公開日 平成12年2月2日(2000.2.2)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 0 1 M 8/02

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

テーマコード\*(参考)

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平10-219659

(22) 出願日 平成10年7月17日(1998.7.17)

(71) 出願人 000189327

上村工業株式会社

大阪府大阪市中央区道修町3丁目2番6号

(72) 発明者 池田 宏之助

大阪府枚方市出口1丁目5番1号 上村工

業株式会社中央研究所内

(72) 発明者 村上 透

大阪府枚方市出口1丁目5番1号 上村工

業株式会社中央研究所内

(74) 代理人 100079304

弁理士 小島 隆司 (外1名)

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 CC03 EE02 EE06

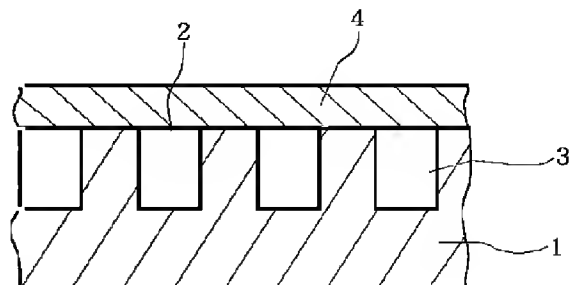
EE19 HH03

(54) 【発明の名称】 燃料電池用金属セパレーター

(57) 【要約】

【解決手段】 正極、負極及びこれら正負極間に介在された電解質を備えた燃料電池モジュールの両側に配置され、ガス流通用の溝部が形成された燃料電池用金属セパレーターにおいて、少なくとも上記溝部表面にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子が共析した貴金属複合めっき皮膜を形成したことを特徴とする燃料電池用金属セパレーター。

【効果】 本発明の燃料電池用金属セパレーターは、従来公知のセパレーターと同様の態様で 사용할 ことができ、特に固体高分子電解質型の燃料電池のセパレーターとして好適であるが、本発明のセパレーターは、接触抵抗が低く、また溝部の撥水性に優れ、良好なガス流通性が確保され、しかもマトリックスが貴金属であるため、耐食性にも優れるものである。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 正極、負極及びこれら正負極間に介在された電解質を備えた燃料電池モジュールの両側に配置され、ガス流通用の溝部が形成された燃料電池用金属セパレーターにおいて、少なくとも上記溝部表面にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子が共析した貴金属複合めっき皮膜を形成したことを特徴とする燃料電池用金属セパレーター。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池、特に固体高分子型燃料電池に用いる金属セパレーターに関する。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】燃料電池、例えば固体高分子型燃料電池などは、通常、正負極間にイオン交換膜等の電解質を介在させたモジュールの両側にガス流通用の溝部が形成された金属セパレーターを配設し、これを複数個並設した構成を有するが、この金属セパレーターとしては、従来、炭素板、金めっきや白金めっきしたステンレス板などが使用されている。

【0003】ところで、金属セパレーターに求められる特性は、図1を参照して説明すると、セパレーター1の表面（接触部2）での炭素紙4などとの接触抵抗が小さいこと、水素が酸化されて生じた水によってガスの流路（セパレーター1に形成された溝部3）が閉塞されず、水滴による妨害がなく、ガスの流通が良好であること、冷却水を流しても腐蝕しないことが要求され、更に耐食性が良好であること、低コストであること、軽量であること等も要求される。特に、接触抵抗が大きいと無駄な電圧を消費するので、セパレーターの接触抵抗はできるだけ小さくすること、またセパレーター溝の撓水性が悪いと、水が付着し、ガス流路が閉塞すると共に、空気極と電解質との境界にできる水分を除去しなければ、この水分が邪魔をした部分で、空気極の反応が進まなくなるので、撓水性が求められる。

【0004】しかし、セパレーターを炭素板で形成した場合、炭素板は導電性が優れておらず、プレス加工などができにくいので、切削加工してガス流通の溝を付けていたが、重量が大きく、切削加工費が高く、コスト高であるなどの欠点があった。また、溝部にフッ素樹脂被覆していたが、加工費が高くなる、被覆フッ素樹脂が剥離し易いなどの欠点があった。

【0005】一方、SUSなどの素材では、プレス加工はできるが、加工性が余りよくないので、素材に微小孔があく可能性があり、ガスが漏れ、ガスのセパレーターとしての性能を満足できなくなる可能性も大きい。そこで、エッチングで溝を切ると、重くて、コスト高になるという問題があった。

【0006】更に、上記の両者共に、溝部の撓水性は良

好ではないという欠点があった。

【0007】本発明は上記事情に鑑みなされたもので、接触抵抗が低く、撓水性に優れ、しかも耐食性の良好な燃料電池用金属セパレーターを提供することを目的とする。

## 【0008】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明は、上記目的を達成するため、正極、負極及びこれら正負極間に介在された電解質を備えた燃料電池モジュールの両側に配置され、ガス流通用の溝部が形成された燃料電池用金属セパレーターにおいて、少なくとも上記溝部表面にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子が共析した貴金属複合めっき皮膜を形成したことを特徴とする燃料電池用金属セパレーターを提供する。

【0009】この場合、上記貴金属複合めっきは、溝部を含むセパレーター全体に施しても、溝部に貴金属複合めっきを施し、接触部に通常金めっきなどを施してもよいが、セパレーター全体に貴金属複合めっきを施すことが、作業面、コスト面などから望ましい。

【0010】本発明のセパレーターは、Pt、Au、Pd、Ag等の貴金属マトリックス中にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子が均一に分散、共析、複合された貴金属複合めっき皮膜が形成されているため、接触抵抗が小さい上、撓水性が高く、溝部の撓水性が良好で、水分除去が容易になされ、溝に水が付着してガス流路を閉塞させるような不都合はなく、ガスの流通性が良好である。また、耐食性も優れたものである。

【0011】以下、本発明につき更に詳しく説明する。

【0012】本発明の燃料電池用金属セパレーターは、少なくともガス流通用溝部表面に貴金属マトリックス中にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子が共析、分散された貴金属複合めっき皮膜が形成されたものである。

【0013】ここで、このセパレーター素材としては、従来公知のものが用いられ、例えばアルミニウム、ステンレススチール、チタンなどを用いることができるが、軽量である等の点でアルミニウム板を素材とすることが好ましい。

【0014】このような金属素材に対して貴金属複合めっきを施す場合は、その素材の種類に応じた公知の前処理、例えばアルミニウム素材に対しては亜鉛置換処理、ステンレススチールやチタンの場合は酸を用いて酸化膜を除去した後、ウッドニッケルめっき液を用いたストライクニッケルめっき処理を行う。

【0015】この場合、このような前処理後、下地めっき皮膜を形成することができ、特にアルミニウムを亜鉛置換処理した場合は下地めっき皮膜を介して貴金属複合めっきを行うことが好ましい。この下地めっき皮膜としては、ニッケル又はニッケル—リン合金等のニッケル合金めっき皮膜を形成することができ、公知の電気ニッケルめっき或いは無電解ニッケルめっき法にて厚さ1〜5

0  $\mu$ m 程度の下地めっき膜を形成することができる。

【0016】貴金属複合めっきは、Pt, Au, Pd, Ag等の貴金属の水溶性塩を含む公知の電気貴金属めっき液にフッ素樹脂又はフッ化黒鉛粒子からなる共析微粒子(撈水性微粒子)を分散した複合めっき液を用いて行うことができる。

【0017】ここで、共析微粒子として具体的には、フッ化黒鉛、PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)、FEP(フルオロネイティッドエチレンプロピレン)、PFA(テトラフルオロエチレン/パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、ETFE(エチレン/テトラフルオロエチレン共重合体)、PVDF(ポリビニリデンフルオライド)、ECTFE(エチレン/クロロトリフルオロエチレン共重合体)などのフッ素化した樹脂の微細粉(約0.1~約3  $\mu$ m粒径)が好適に使用できる。

【0018】これらは水に濡れにくいために、公知の界面活性剤を使用して、公知の方法で分散させるとよい。分散及び共析のためには、カチオン界面活性剤が好適に使用できる。カチオン界面活性剤としては、疎水基として、長鎖の炭化水素基を持つもの及びパーフルオロアルキル基を有するものが使用できる。例えば、ドデシルトリメチルアンモニウムブロミド、ドデシルベンジルジメチルアンモニウムクロリド、パーフルオロアルキルトリメチルアンモニウムブロミドなどである。

【0019】なお、これら共析微粒子の使用量は適宜選定され、後述する複合量(共析量)が得られるような量で添加する。

【0020】上記貴金属複合めっき液を用いて複合めっきを行うに際し、共析させる分散粒子を分散させておくのに都合のよい液攪拌、液循環法を使用することが好ましい。めっき液は静置していると、下に沈殿したり、上に浮いたりするので、緩く液循環するのがよい。

【0021】めっき品物は、揺動すると、めっき外観が均一になり易い。その他、液温、pH、電流密度などのめっき条件は、共析粒子を含まないめっき液(マトリックスめっき液)と同様でよい。

【0022】このような貴金属複合めっき液を用いて得られるめっき皮膜は、貴金属マトリックス中に上記共析微粒子が均一に分散、共析されてなるものであるが、共析微粒子のめっき皮膜中への複合量(共析量)は約2~30vol%であることが好ましく、特に約10vol%

前処理

アルカリ洗浄剤	U-クリーナーUA-68(50g/L, 50℃, 5分)
	↓ 水洗浄
アルカリ性エッチング剤	AZ-102(50g/L, 60℃, 30秒)
	↓ 水洗浄
ジスマット ジスマッター	AZ-201(200g/L)+硝酸(800mL/L)(室温, 30秒)

%以上の複合量であると、撈水性が高いものである。また、このめっき皮膜は、その表面に共析微粒子が露頭しているものであるが、めっき皮膜を加熱して共析したフッ素樹脂を一部溶融すると、更に撈水性が向上する。

【0023】また、上記めっき皮膜の水との接触角は、フッ素樹脂を共析した場合は約110~60°、フッ化黒鉛粒子を共析した場合は約150~110°である。

【0024】なお、上記めっき皮膜の厚さも適宜選定されるが、0.2~20  $\mu$ m、特に1~15  $\mu$ mである。

【0025】本発明においては、上記セパレーターの少なくとも溝部に上記貴金属複合めっき皮膜を形成するものであるが、この場合、溝部と接触部とに共にこのめっき皮膜を形成することができ、この複合めっき皮膜はマトリックスが貴金属であるため、接触抵抗が低いものであるが、必要により溝部に上記複合めっきを行い、接触部には共析微粒子を含まない貴金属めっきを行い、貴金属めっき皮膜を形成することができる。例えば、溝部にPt/PTFE複合めっきを行い、接触部には金めっきを別々に行ってもよい。しかし、この場合は、レジストを添付してマスクした後に剥離し、更に別場所にレジストを添付しめっきした後に剥離する必要があるため、時間、労力がかかり、コストアップになるおそれがあり、従って、溝と接触部を同時にめっきすることが望ましい。

【0026】

【発明の効果】本発明の燃料電池用金属セパレーターは、従来公知のセパレーターと同様の態様で使うことができ、特に固体高分子電解質型の燃料電池のセパレーターとして好適であるが、本発明のセパレーターは、接触抵抗が低く、また溝部の撈水性に優れ、良好なガス流通性が確保され、しかもマトリックスが貴金属であるため、耐食性にも優れるものである。

【0027】

【実施例】以下、実施例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

【0028】[実施例1] 外寸200×184mmのアルミニウム製ガス流通溝付セパレーターを常法に従って下記に示す前処理(亜鉛置換処理、上村工業(株)製AZプロセスを使用)を行った後、下記組成の電気ニッケルめっき液を用いて20  $\mu$ mのニッケルめっき皮膜を形成し、その上に下記組成の電気白金複合めっき液を用いて0.5  $\mu$ mの複合白金めっき皮膜を形成した。

	↓ 水洗浄
亜鉛置換	AZ-301 (室温, 1分)
	↓ 水洗浄
硝酸浸漬	硝酸800mL/L (室温, 30秒)
	↓ 水洗浄
亜鉛置換	AZ-301 (室温, 1分)
電気ニッケルめっき液及びめっき条件	
硫酸ニッケル	285 g/L
塩化ニッケル	45 g/L
硼酸	40 g/L
pH	4.2
液温	55℃
攪拌	空気攪拌
陰極電流密度	5 A/dm <sup>2</sup>
めっき時間	22分間
電気白金複合めっき液及びめっき条件	
H <sub>2</sub> Pt(NO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Ptとして5 g/L
PTFE	20 g/L
ドデシルトリメチルアンモニウムクロリド	2 g/L
硫酸でpH2とする	
液温	40℃
陰極電流密度	0.5 A/dm <sup>2</sup>
陽極	Pt
めっき時間	4分間
攪拌	ポンプ循環による液攪拌

【0029】得られた白金複合めっき皮膜は、白金中にPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）が均一に共析、分散しているもので、PTFEの共析量は15vol%であった。

【0030】このめっきしたセパレーターにカーボン板を載せ、面圧5kgf/cm<sup>2</sup>でプレスし、このセパレーターのカーボン板との接触抵抗を測定した。その結果、抵抗は全て5~20mΩ×cm<sup>2</sup>であり、良好であった。更に、腐食環境として、75℃での飽和水蒸気を含む空気に100日間曝した後の接触抵抗を測定したが、接触抵抗の増大は5%以内であった。

【0031】次に、上記セパレーターを16枚重ね、その間に、イオン交換膜を高分子電解質とし、その両側に公知の酸素電極、水素電極を配したモジュールを介装した燃料電池を作成し、100時間の発電試験を行った。

電気銀複合めっき液及びめっき条件	
KAg(CN) <sub>2</sub>	Agとして20 g/L
KCN (フリー)	15 g/L
炭酸カリウム	15 g/L
PTFE	30 g/L
ドデシルベンジルジメチルアンモニウムクロリド	3 g/L
液温	25℃
陰極電流密度	1 A/dm <sup>2</sup>
攪拌	ポンプ循環による液攪拌

【0035】得られた銀複合めっき皮膜は、PTFEが

発電試験後に、上記セパレーターの接触抵抗を測定した結果、接触抵抗の増大は10%以内であり、セパレーターに殆ど劣化がないことが判明した。

【0032】また、上記燃料電池は100時間後も劣化は殆ど認められず、水素と酸素ガスの利用率が殆ど低下しないことが判明した。

【0033】更に、発電試験前後に、上記セパレーター（白金複合めっき皮膜）と水との接触角を測定した結果、接触角は90~100°であり、撥水性は非常に良好であった。

【0034】[実施例2] 実施例1の白金複合めっきの替りに、下記組成の電気銀複合めっき液を用いて10μmの銀複合めっき皮膜を形成した以外は実施例1と同様にしてセパレーターを得た。

20vol%共析しているものであり、実施例1と同様

の燃料電池を組み立て、同様の試験を行った結果も、実施例1と同様であった。

【図面の簡単な説明】

【図1】燃料電池用金属セパレーターの一例を示す概略図である。

【符号の説明】

- 1 セパレーター
- 2 接触部
- 3 溝部
- 4 炭素紙

【図1】

